

com. GP 1424 967

**POWDER COATING COMPOSITIONS**

**Patent number:** JP50051539  
**Publication date:** 1975-05-08  
**Inventor:**  
**Applicant:**  
**Classification:**  
**- international:** C08K5/09; C08L33/04; C09D3/80; C09D5/00  
**- european:**  
**Application number:** JP19740102109 19740906  
**Priority number(s):** US19730394874 19730906

**Also published in:**

GB1424967 (A)  
DE2441622 (A)

Abstract not available for JP50051539

Abstract of correspondent: **GB1424967**

1424967 Coating composition FORD MOTOR CO Ltd 5 Sept 1974 [6 Sept 1973] 38873/74 Heading C3E  
A powder coating composition comprises a mixture of: (I) a copolymer derived from 5- 20% by wt. of a glycidyl ester of a monoethylenically unsaturated acid; 2-10% by wt. of a C 5-7 hydroxyalkyl (meth) acrylate; and 70-93% of other monoethylenically unsaturated monomer(s), having a glass transition temperature of 40-90 C. and average M.W. 1500 to 15,000, and (II) a saturated, straight chain, C 4-20 aliphatic dicarboxylic acid to provide 0.8-1.1 carboxyl groups for each functional group in I (i.e. epoxy plus hydroxy groups). Examples of II are azelaic, adipic, pimelic, suberic, sebacic, undecanoic and brassylic acids. The composition may also contain cross-linking catalysts, flow control agents, pigments and antistatic agents.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

優先権主張  
国名 アメリカ合衆国  
出願年月日 1973年9月6日  
出願番号 第394874号



## 特 許 願 01

昭和49年 9月 6日

特許庁長官 齊藤英雄 殿

### 1. 発明の名称

フタイトカク  
粉体塗料

### 2. 発明者

住 所 アメリカ合衆国ミシガン州ディアボーン・  
ハイッ・クロニン・ドライブ657

氏 名 サントク・エス・ラバナ  
(ほか1名)

### 3. 特許出願人

国 籍 アメリカ合衆国  
住 所 アメリカ合衆国ミシガン州ディアボーン・  
ザ・アメリカン・ロード(番地なし)  
名 称 フォード・モーター・カンパニー  
代表者 シドニー・ケリー

### 4. 代 理 人 〒100

住 所(居所) 東京都千代田区大手町2丁目2番1号  
新大手町ビル929号室  
TEL: 241-1526

氏 名(名称) 弁護士エルマー・イー・ウエルティ

① 日本国特許庁

## 公開特許公報

⑪特開昭 50-51539

⑬公開日 昭50.(1975) 5.8

⑫特願昭 49-102109

⑭出願日 昭49.(1974) 9.6

審査請求 未請求 (全8頁)

庁内整理番号 7202 48

7045 48 6692 48

7045 48

⑫日本分類

24B825.1

24B C04

25(C)C142.12

25(A)A271.3

⑫Int.Cl?

C09D 3/80

C09D 5/00

C08L 33/04

C08K 5/09

## 明 細 書

### 1 発明の名称

粉体塗料

### 2 特許請求の範囲

下記のアおよびイとの共反応性混合体からなり、  
顔料および他の非反応性成分を除いた粉体塗料:

(A)モノエチレン不飽和酸のグリシジル・エステル  
が約5~20(重量)%, C<sub>6</sub>-C<sub>8</sub>ヒドロキ  
シアルキル・アクリル酸塩またはメタクリル酸塩  
が約2~10(重量)%, および他のモノエチレ  
ン不飽和単量体が約70~93(重量)%からな  
り、40~90℃のガラス転位温度と1500~  
15000の分子量(M<sub>n</sub>)を有する共重合体、

(イ)前記の共重合体の各官能基に対して0.8~1.1  
のカルボキシル基を有し単位分子当り4~20個  
の炭素原子を含有する飽和、直鎖、脂肪族、ジカ  
ルボン酸、前記の官能基はエポキシ基およびヒド  
ロキシ基から選ぶ。

### 3 発明の詳細な説明

液体塗料系に通常利用される有機溶媒を本質的

に含まない塗料基質用には粉体塗料材が特に望ま  
しい。従つて、それらは加熱硬化時に周囲へ揮発  
物質をたとえあるとしても少ししか放出しない。

本発明の共同発明者であるラバナ(Santokh  
S. Labana)による米国特許第3,752,870号  
に記載された粉体塗料は(1)アクリル酸グリシジル  
および他のオレフィン不飽和単量体、(2)ジカルボ  
ン酸架橋剤、および(3)重合流動調節剤からなる。

我々の米国特許第3,730,930号に記載され  
た粉体塗料材は(1)アクリル酸グリシジルおよび他  
のオレフィン不飽和単量体の共重合体、(2)モノカ  
ルボン酸とジカルボン酸の混合体からなる架橋剤、  
および(3)重合流動調節剤からなる。

本発明の共同発明者であるラバナ(Santokh S.  
Labana)、およびチャング(Yun R. Chang)に  
よる1971年8月16日出願し同時係属中の  
米国特許出願番号第1,722,233号に記載された  
粉体塗料材は(1)アクリル酸ヒドロキシおよび他の  
オレフィン不飽和単量体の共重合体、(2)無水物、  
ジカルボン酸、およびメラミンから選んだ架橋剤、

および(3)重合流動調節剤からなる。

アクリル酸グリシジルによりもたらされるヒドロキシ-官能性およびエポキシ-官能性をもたせるように共重合体を変性することだけで前記の組成に比較して予想外の利点を有する粉体塗料組成がえられることを発見した。これは、約2~10(重量) %の $C_3 - C_{10}$  ヒドロキシアルキル・アクリル酸塩およびアクリル酸グリシジルおよびメタクリル酸グリシジルのようなモノエチレン不飽和カルボン酸のグリシジル・エステルを約5~20(重量) %、残りの共重合体を形成するオレフィン不飽和単量体とを含有することにより達成される。

特定の化合物を呼ぶ場合を除いて、本明細書に使用する用語“アクリル酸塩”はアクリル酸およびメタクリル酸のエステル、即ちアクリル酸塩およびメタクリル酸塩を含む。本発明により調製の粉体は一層適合する。それらは相分離抵抗を示す吹付け乾燥によつて容易に且つ一層効果的に処理される。それらは融液混合や真空乾燥法によつて

も処理できる。それらは押出しやミル圧延によつて容易に且つ効果的に混合される。さらに、0.1 mm (4 mil) 以下のフィルム深さを適用する場合は、帯電防止を要しない。

本発明の粉末塗料材料用に適切なエポキシおよびヒドロキシ官能共重合体は適当な $\alpha - \beta$ オレフィン不飽和単量体の普通の遊離基導入重合によつて容易に生成される。垂下エポキシド基および垂下ヒドロキシル基の両方を有するこれら共重合体は潜在的に自己架橋性であるがエポキシ-ヒドロキシ反応は極めて遅く且つ硬化反応を促進するには多量の触媒が必要である。従つて、本発明では架橋剤、即ちジカルボン酸が塗料結合剤系に添加される。

本発明に使用の共重合体は、モノエチレン不飽和カルボン酸のグリシジル・エステル、例えばアクリル酸グリシジルおよびメタクリル酸グリシジルの約5~20(重量) % (望ましくは8~15%) を含有する。これら単量体はそのエポキシ官能性をもつた共重合体を提供する。エポキシ官能性

は不飽和単量体重合混合体にヒドロキシ・アクリル酸塩を約2~10(重量) % 結合させることにより提供される。ヒドロキシ・アクリル酸塩は $C_3 - C_{10}$  二価アルコールとアクリル酸またはメタクリル酸のエステルが望ましい。これらの中で、メタクリル酸2-ヒドロキシエチルおよびメタクリル酸2-ヒドロキシプロピルが望ましい。

共重合体の残部は本質的に一官能、 $\alpha - \beta$ オレフィン不飽和単量体からなる。これらをアクリル酸塩またはアクリル酸塩とモノビニル炭化水素の混合体にもできる。共重合体の50(重量) % 以上が、 $C_3 - C_{10}$  一価アルコールおよびアクリルまたはメタクリル酸のエステル、即ちメタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸ヘキシル、およびメタクリル酸2-エチルヘキシルであることが望ましい。スチレン、 $\alpha$ -メチル・スチレン、ビニル・トルエン、 $\alpha$ -ブチル・スチレン、クロロスチレン、および $\alpha$ -メチル・スチレンのような $C_3 - C_{10}$  モノビニル炭化水素が適するが共重合

体の50(重量) % 以上であることが望ましい。塩化ビニル、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、および酢酸ビニルのような他のビニル単量体も変性単量体として使用できる。使用時これらは単量体混合体の0~30(重量) % からなる。

これら塗料材料に使用するエポキシ-官能およびヒドロキシ-官能共重合体は40~90℃、望ましくは50~80℃のガラス転位温度、そして約1500~15,000、望ましくは約250~6,000の分子量( $\bar{M}_n$ )を有する。

この共重合体の調製において、エポキシ-官能単量体、例えばメタクリル酸グリシジル、およびヒドロキシ-官能単量体、例えばメタクリル酸2-ヒドロキシエチルを前記のエチレン不飽和残留単量体と混合して粉体塗料材料用の共重合体をうる割合において普通の遊離基開始重合により反応させる。従つて、望ましいエチレン不飽和残留単量体が共重合体を生成すべくエポキシ-官能単量体と共に使用される時は、エポキシ-官能単量体、例えばメタクリル酸グリシジルは約5~20

(重量) % 共重合体中に存在し、ヒドロキシ-官能単量体、例えばメタクリル酸 2-ヒドロキシ・プロピルは約 2 ~ 10 (重量) % 共重合体中に存在し、望ましい残留単量体は約 93 ~ 70 (重量) % 存在する。一般に、遊離基開始剤は重合反応を誘導するために必要である。この目的に適する多数の遊離基開始剤が知られている。これらには過酸化ベンゾイル、過酸化ラウリル、 $\alpha$ -ブチルヒドロキシペルオキシド、過酸化スルフォニル・アセチルシクロヘキサン、過酸化ジイソブチリル、ジ-(2-エチルヘキシル)ペルオキシ 2 炭酸塩、ジイソプロピル・ペルオキシ 2 炭酸塩、 $\alpha$ -ブチルペルオキシビバレイト、過酸化デカノイル、アゾビス(2-メチルプロピオニトリル)、等がある。重合はエポキシ-官能、ヒドロキシ-官能共重合体が可溶性の溶媒を使用する溶液中で行なうことが望ましい。この重合にはトルエン、キシレン、ジオキサン、ブタノン、などの溶媒が適する。溶液中でエポキシ-官能、ヒドロキシ官能共重合体が調製されると、固体共重合体は、適当な攪拌

条件下ヘキサン、オクタンまたは水のような共重合体に対して非溶媒に溶液を徐々に注入することにより沈殿する。かく生成の共重合体をさらに乾燥して塗料のベーキング温度で揮発する物質の含有量を 3 % 以下にする。

これら共重合体は乳化重合、懸濁重合、塊状重合あるいはそれらの適当な組み合わせによつても調製できる。共重合体のこれら調製法には、共重合体の分子量を希望の範囲に制御するため連鎖移動剤が必要である。また、これらの方法でえられた固体共重合体は塗料のベーキング温度で揮発する物質の含有量を 3 % 以下にするため乾燥しなければならない。

粉体塗料には、エポキシ-官能、ヒドロキシ-官能共重合体の分子量および分子量分布が重要である。分子量 ( $M_n$ ) は約 1500 ~ 約 15000 の範囲に渡るが、共重合体成分は高分子部を多量に含有してはならない。20000 以上の分子量の共重合体が 5 % 以上あつてはならない。重量平均分子量と数平均分子量の比 ( $M_w/M_n$ ) として測

定される分子量分布は 1.6 ~ 3.0 の範囲にある必要があり、望ましくは 1.7 ~ 2.2 の範囲内である。

これら粉体塗料は前記の共重合体用架橋剤として、共重合体中の各官能基(エポキシ基およびヒドロキシ基を意味する)に対して約 0.8 ~ 1.1 のカルボキシル基量の単位分子当り 4 ~ 20 個の炭素原子を含有する飽和、直鎖、脂肪族、ジカルボン酸を含有する。一分子当り炭素原子を 5 ~ 13 個含有するジカルボン酸が望ましい。さらに詳しくは、最も望ましい酸はアジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ラウデカノン酸およびブラシリン酸である。もちろんその酸は最終硬化膜形成の架橋剤として使用される。

これら粉体塗料組成は粉体塗料混合体の一部として流動調節剤を含有するのが有利である。流動調節剤は少なくとも 1000 の分子量 ( $M_n$ ) をもつ重合体であり、混合体の 0.05 ~ 4.0 (重量) % からなるのが望ましい。流動調節剤は混合体の共重合体のガラス転位温度以下、少なくとも 20 °C のガラス転位温度を有する。

適切な流動調節剤の 1 グループはアクリル重合体である。流動調節剤として使用の望ましいアクリル重合体はアクリル酸ポリラウリル、アクリル酸ポリブチル、ポリ(アクリル酸・2-エチルヘキシル)、メタクリル酸ポリラウリルおよびメタクリル酸イソデシルである。

また流動調節剤は粉体のベーキング温度で混合体に利用の共重合体よりも低い表面張力を有するフッ化重合体である。フッ化重合体である場合の望ましい流動調節剤はポリエチレングリコールまたはポリプロピレングリコールとフッ化脂肪酸のエステルである。例えば、分子量 2500 以上のポリエチレングリコールとペルフルオロオクタノイン酸のエステルは有用な流動調節剤である。分子量 1000 以上、望ましくは 1000 ~ 20000 の重合シロキサンも流動調節剤、例えばポリジメチル・シロキサンやポリメチルフェニル・シロキサンとして有用である。

本発明により生成の塗料組成はベーキング温度で粉体塗料組成の架橋速度を増すために少量の触

媒を含有する。ベーキング温度は普通130～200℃で、触媒はベーキング温度で粉体塗料組成に対して1分以上40分以下のゲル時間が必要である。このゲル時間はベーキング温度で1～12分間、望ましくは約2～8分である。

粉体塗料組成用に適切な触媒としてはテトラアルキルアンモニウム塩、イミダゾール型触媒、第三アミンおよび有機カルボン酸の金属塩などがある。テトラアルキルアンモニウム塩触媒には次のものがある：テトラブチル塩化（臭化またはヨウ化）アンモニウム、塩化トリメチルベンジルアンモニウム、ドデシル・ジメチル（2-フエノキシエチル）臭化アンモニウム、ジエチル（2-ヒドロキシ・エチル）メチル臭化アンモニウム。イミダゾール型の適当な触媒としては：2-メチル-4-エチル・イミダゾール、2-メチル・イミダゾール、イミダゾール、2-[(N-ベンジルアニリノ)メチル]-2-リン酸イミダゾール、および2-ベンジル-2-塩化水素酸イミダゾールなどがある。本発明の粉体塗料組成用に適当な第

三アミン触媒としては：トリエチレンジアミン、N,N-ジエチルシクロヘキシルアミン、およびN-メチル・モルフォリンがある。本発明の粉体塗料用触媒である有機カルボン酸の金属塩としては（限定ではないが）オクテン酸第一スズ、ナフテン酸亜鉛、ナフテン酸コバルト、オクテン酸亜鉛、2-ヘキソン酸第一スズ、プロピオン酸フェニル第二水銀、ネオデカノン酸鉛、ジラウリン酸ジブチル・スズ、安息香酸リチウムなどがある。個々の粉体塗料組成に使用の触媒は一般に室温で固体で50～200℃の融点を有する。

通常の非金属および金属顔料はこれら粉体塗料組成と共に使用できる。それら顔料はその種類および焼付け塗料に必要な光沢に依存して通常全混合体の約6～35（重量）％になるように使用する。

本発明の各粉体塗料材は品物へ静電法により適用できるから、それはその組成体に少量の帯電防止剤を含有する必要がある。特に、帯電防止剤は全粉体塗料成分の0.05（重量）％程度含有され

る。適当な帯電防止剤（限定ではない）としては触媒としても役立つ前記のテトラアルキルアンモニウム塩がある。他の帯電防止剤としては：アルキル-ポリ（エチレンオキシ）リン酸塩やアルキルラウリル-ポリ（エチレンオキシ）リン酸塩、例えばポリ（エチレンオキシ）リン酸エチル・ベンジル；ポリエチレンアミン、ポリ（2-ビニルピロリドン）、塩化ビリジニウム、ポリ（塩化ビニル・ビリジニウム）、ポリビニル・アルコールまたは無機塩がある。

必要ならば、本発明の粉体塗料組成に可塑剤を使用できる。極めて良く使用される可塑剤の型としてはアジピン酸塩、リン酸塩、フタル酸塩、セバシン酸塩、アジピン酸またはアゼライン酸から誘導のポリエステルおよびエポキシまたはエポキシ化可塑剤がある。これら可塑剤としてはアジピン酸ジヘキシル、アジピン酸ジイソオクチル、アジピン酸ジシクロヘキシル、リン酸トリフェニル、リン酸トリクレゾール、リン酸トリブチ、フタル酸ジブチル、フタル酸ジオクチル、フタル酸ブチ

ル・オクチル、セバシン酸ジオクチル、セバシン酸ブチル・ベンジル、セバシン酸ジベンジル、ブテンジオール-1,4-ジグリシジル・エステル、酢酸・酪酸セルロース、等がある。

本発明の粉体塗料組成の体系化に使用する各種材料を記載したが、種々の粉体塗料組成を説明するために多数の実施例を以下に示す。

説明の共重合体は、分子量の範囲は約1500～約15,000そして単位官能基（エポキシ基およびヒドロキシ基を意味する）当りの架橋剤のカルボキシル基濃度は約0.8～約1.1の範囲内で変化する。

#### 例 1

エポキシ-官能、ヒドロキシ-官能共重合体を後述の方法で下記諸成分から調製する：

反応物質	重(g)	総反応物の重量%
メタクリル酸グリシジル	30.0	15
メタクリル酸ヒドロキシエチル	10.0	5
メタクリル酸ブチル	80.0	40
メタクリル酸メチル	80.0	40

上記の単量体を上記の割合で混和して2,2'-アゾビス-(2-メチルプロピオニトリル)(以後AIBNと呼ぶ)を110g混合体に添加する。窒素雰囲気下で強く攪拌しながら80~90℃に加熱の200mlトルエンに混合体を徐々に添加する。トルエン容器の頭部に凝縮器を設けトルエン蒸気を凝縮してその容器に良す。単量体混合体は制御弁を介して添加する、添加速度は外部加熱器の余熱で90~110℃の反応温度に維持されるように調節する。単量体混合体の添加完了(3時間)後、10mlアセトンに溶解の0.8g AIBNを1/2時間かけて添加するそして還流をさらに2時間継続する。

生成トルエン-重合体溶液を200mlアセトンで希釈して2mlヘキサン中で凝固させる。白色粉体を真空炉中で55℃、24時間乾燥する。その分子量( $M_w/M_n = 6700/3200$ )を決定しWPE(単位エポキシド基)は約1000である。

プレポリマー4.7gを商用エピクロロヒドリン-ビスフェノールA型・ジエポキシド(融点:

64~76℃、粘度:ブチルカルビトール中に40%溶液として0.8~1.7、平均分子量:900、平均WPE:450~525)3g、アゼライン酸5.3g、二酸化チタン4.5g、黄色フェライト(顔料)4.0gおよびポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)0.4gと共にボールミル中で3~5時間粉砕する。ポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)の分子量、 $M_n = 9000$ が決定される。微粉混合体を110℃、10分間ロールミルにかける。生成融体を粒状化そして微粉化して15~50μの粒子にする。

このようにしてそられた粉体が本発明の粉体塗料である。その粉体を充電電圧60KVで作動する静電吹付け銃を用いて研磨銅板に吹付ける。吹付け後、その板を175℃の温度で20分間保持する。

板上にえられた光沢塗料は銅板に良く接着し優れた衝撃強度を有する。この塗料をガラス、黄銅、亜鉛、アルミニウム、銅および青銅のような他の基質に適用しても良い接着性を示す。えられた塗

料はガソリン、キシレン、アセトン、メチル・エチル・ケトンまたはトルエンに溶けない。

#### 例 2

エポキシ-官能、ヒドロキシ-官能共重合体を後述の方法で下記諸成分から調製する:

反応物質	総反応物質の重量%
メタクリル酸グリシジル	10
メタクリル酸ヒドロキシエチレン	5
メタクリル酸ブチル	45
メタクリル酸メチル	40

これらの単量体を混和する。全混合体の6%のAIBNを5.0mlアセトンに溶解して単量体混合体へ添加する。これら単量体を例1の方法で反応させてエポキシ-官能、ヒドロキシ-官能共重合体を生成する。この共重合体はガラス転位温度(以後T<sub>g</sub>と呼ぶ)53℃そして $M_w/M_n = 5145/2950$ の分子量を有する。

このプレポリマーの4.7%トルエン溶液100gをアゼライン酸4.0g、例1に使用のジエポキシド3.0g、二酸化チタン5.0g、黄色フェライ

ト4.0gおよび $M_n = 9000$ のポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)0.41gと共に溶解する。分散はベブルミルで1晩混合体をボールミルすることによって行なう。生成均質混合体はトルエンで40%総固体分に減少させて60℃(140°F)で吹付け乾燥する。

1.3%以下の溶媒を含有し且つ例1に記載の基質用に適する形状の均質粉体が生成される。

例1のごとく、粉体を銅板に静電吹付け後、それを170℃で25分間硬化する。生成の光沢性塗料は接着性および衝撃強度が優れている。それはキシレン、トルエン、ガソリン、メタノールおよびメチル・エチル・ケトンに不溶性である。

#### 例 3

エポキシ-官能、ヒドロキシ-官能共重合体を後述の方法で次の諸成分から調製する:

反応物質	重量(g)	総反応物質の重量%
メタクリル酸グリシジル	30.0	15
メタクリル酸ヒドロキシメチル	6.0	3
メタクリル酸ブチル	84.0	42

メタクリル酸メチル 80.0 40

11.0g (5.5%) の AIBN を 25 ml アセトンに溶解して単量体混合体へ添加する。例1のごとく単量体を反応させて  $M_w/M_n=6870/3600$  の分子量と 54℃ の Tg を有するエポキシ-官能、ヒドロキシ-官能共重合体を生成する。

この共重合体を例1のごとく単離させて、アゼライン酸 5.5g を使用すること以外例1と同一材料、同一量を配合はブラベンダー プラスチューダ (Brabender Plasticorder) 押出機 25 で温度 110℃ で行なう。これら塗料は優れた接着性と衝撃強度を有する。これら塗料はトルエン、キシレンまたはメチル・エチル・ケトンに 1 分間高溶媒抵抗を示す。

#### 例 4

エポキシ官能、ヒドロキシ-官能共重合体を後述の方法で次の諸成分から調製する：

反応物質	重量(g)	総反応物質の重量(g)
メタクリル酸グリシジル	20.0	10
メタクリル酸ヒドロキシエチル	20.0	10

メタクリル酸ヒドロキシエチル 2 (重量) %、アクリル酸イソブチル 25 (重量) %、 $\alpha$ -メチル・スチレン 15 (重量) %、メタアクリロニトリル 15 (重量) % およびメタアクリル酸メチル 23 (重量) % から生成する、および (2) 7.9g のアゼライン酸を使用する。

#### 例 7

次の違いを除いて例1の手順をくり返す：(1) 共重合体をメタクリル酸グリシジル 5 (重量) %、メタクリル酸ヒドロキシエチル 10 (重量) %、アクリロニトリル 10 (重量) %、アクリル酸ブチル 30 (重量) % およびメタクリル酸メチル 45 (重量) % から生成する。

#### 例 8

官能的に当量のアジピン酸をアジピン酸架橋剤の代りにするという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 9

アジピン酸架橋剤の代りに官能的に当量のピメリン酸を使用するという唯一の相違で例1～7の

メタクリル酸ブチル 80.0 40

メタクリル酸メチル 80.0 40

上記の単量体を混和し、それに 20 ml アセトンに溶解の AIBN 12g (6%) を添加する。単量体を例1の方法に従って反応させて  $M_w/M_n=5670/2970$  の分子量と 56℃ の Tg を有するエポキシ-官能、ヒドロキシ-官能共重合体を生成する。

このプレポリマーの単離および配合は、共重合体およびアゼライン酸を除いて、同じ配合材且つ同じ割合で例1の方法に従って行なう。この場合、アゼライン酸は 4.1g 使用する。塗料の吹付けおよび硬化は例1の方法に従って行なう。

#### 例 5

例1～4の手順を共重合体中のメタクリル酸グリシジルを等モル量のアクリル酸グリシジルと置換するという唯一の差でくり返す。

#### 例 6

例1の手順を次の相違を除いてくり返す：(1) 共重合体をメタクリル酸グリシジル 20 (重量) %、

手順をくり返す。

#### 例 10

アジピン酸架橋剤の代りに官能的に当量のスベリン酸を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 11

アジピン酸架橋剤の代りに官能的に当量のセバシン酸を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 12

アゼライン酸架橋剤の代りに官能的に当量のウンデカノイン酸を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 13

アゼライン酸架橋剤の代りに官能的に当量のブラシリン酸を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 14

共重合体の生成にメタクリル酸ヒドロキシエチルの代りに官能的に当量のアクリル酸ヒドロキシ

エチルを使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 15

共重合体の生成にメタクリル酸ヒドロキシエチルの代りに官能的に当量のアクリル酸ヒドロキシプロピルを使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 16

共重合体の生成にメタクリル酸ヒドロキシエチルの代りに官能的に当量のメタクリル酸ヒドロキシプロピルを使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 17

粉体塗料材の配合にポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)流動調節剤の代りに当量のポリ(アクリル酸ラウリル)( $M_n = 8000$ )を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 18

粉体塗料材の配合にポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)流動調節剤( $M_n = 9000$ )の代

りに当量のポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 19

粉体塗料材の配合にポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)流動調節剤の代りに当量のポリ(アクリル酸ブチル)( $M_n = 9000$ )を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 20

粉体塗料材の配合にポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)流動調節剤の代りに当量のポリ(メタクリル酸イソデシル)を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 21

塗料材の配合にポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)の代りに当量のポリエチレン・グリコール・ペルフロロ・オクタン酸塩を使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 22

ポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)流動調節剤の代りに当量のポリ(メチル・シロキサン)を塗料材の混合に使用するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 23

流動調節剤、ポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)を0.42gから0.25gに減らすという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 24

流動調節剤、ポリ(アクリル酸2-エチルヘキシル)を0.42gから2.0gに増加するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 25

流動調節剤、ポリ(アクリル酸エチルヘキシル)を0.42gから4.0gに増加するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す。

#### 例 26

共重合体を次の諸単量体から生成するという唯一の相違で例1～7の手順をくり返す：

反応物質	総反応物質の重量(%)
メタクリル酸グリジル	15
メタクリル酸ヒドロキシエチル	6
塩化ビニル	22
メタクリル酸ブチル	17
メタクリル酸メチル	40

#### 例 27

次の相違を除いて例1の手順をくり返す：(1)共重合体をメタクリル酸グリジル20(重量)％、メタクリル酸ヒドロキシエチル2(重量)％、アクリル酸ブチル20(重量)％、およびメタクリル酸メチル58(重量)％から生成する、(2)単量体混合体の反応に反応開始剤7(重量)％を用いて共重合体を生成する、および(3)80(重量)部のアゼライン酸を共重合体47(重量)部および例1の塗料材の他の成分で且つ等量に配合する。共重合体の分子量( $M_n$ )は約1500である。

#### 例 28

次の相違を除いて例1の手順をくり返す：(1)共重合体をメタクリル酸グリジル8(重量)％、メタクリル酸ヒドロキシ・エチル5(重量)％、アクリル酸ブチル22(重量)％、メタクリル酸メチル60(重量)％およびスチレン6(重量)％から生成する、(2)単量体混合体の反応に0.8(重量)％の反応開始剤を用いて重合体を生成する、および(3)アゼライン酸3.2gを共重合体50



9 および例1の塗料材の他の成分で且つ等量に配合する。塗料の吹付けおよび硬化は例1の手順で行なり。この重合体の分子量 ( $\bar{M}_n$ ) は約15,000である。

前記の塗料を各種の木材、金属およびガラス基質に吹付けて加熱硬化すると、基質への優れた接着性および有機溶媒抵抗を示す塗料がえられる。

本明細書を考慮すれば本発明の多くの改良があることは明白である。本発明の範囲内のそのようなすべての改良は特許請求の範囲内にあることを意図している。

代理人 弁護士 エルマー・イー・ウエルティ

# 5. 添付書類の目録

(1) 明細書	1通
<del>(2) 図面</del>	<del>1通</del> 147枚
(3) 願書副本	1通
(4) 委任状及び訳文	各1通
(5) 優先権証明書	1通

# 6. 前記以外の発明者、特許出願人又は代理人 1D・字削除

## (1) 発明者

住所 アメリカ合衆国ミシガン州フーアミントン・  
ハイストーン・ドライブ27391  
氏名 アレス・ニコラス・スイオドレ